

Օգտագործելով անցումների հավանականությունների վերաբերյալ պատկերացումը, կառուցված են ընդհանուր արտահայտություններ այն ինտեգրալների համար, որոնք նկարագրում են կամայական բևեռացումով քվանտների ճառագայթմամբ ուղեկցվող բախումների ընթացքում մասնիկների բաշխումների փոփոխությունը: Բերված են ճառագայթված քվանտների համար բալանսի հավասարումներ:

ON THE INTEGRAL OF RADIATIVE COLLISIONS OF PARTICLES

A. V. HAKOPYAN

General expressions for integrals describing the variation of particle distribution in collisional processes, accompanied by emission of arbitrarily polarized quanta, have been constructed by using the representation of transition probabilities. The balance equation for emitted quanta are presented.

Изв. АН Армянской ССР, Физика, т. 23, вып. 1, 20—24 (1988)

УДК 537.226.33

О ВОЗМОЖНОСТИ ОБРАЗОВАНИЯ ЭКСИТОНОВ В СЕГНЕТОЭЛЕКТРИКАХ ТИПА ПОРЯДОК—БЕСПОРЯДОК

Х. В. НЕРКАРАЯН

НИИ физики конденсированных сред ЕГУ

(Поступила в редакцию 24 ноября 1986 г.)

Обсуждается возможность образования сильно связанных экситонов в сегнетоэлектриках типа порядок—беспорядок. Показано, что в таких системах энергия, необходимая для образования экситонов, не только неоднозначно зависит от напряженности внешнего электростатического поля, но и меняется скачком.

Как известно, в сегнетоэлектриках типа порядок—беспорядок у ионов, определяющих поляризацию кристалла, имеется несколько, обычно два, симметричных положения равновесия в ячейке. Такая ситуация часто встречается в кристаллах с водородными связями, где протон движется в потенциале с двумя минимумами (см. рис. 1). В этих условиях основное

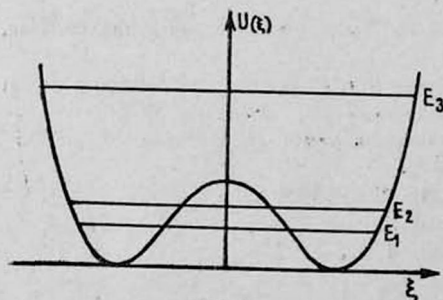


Рис. 1. Эффективный потенциал, действующий на протон в кристаллах типа порядок—беспорядок.

(симметричное) и первое возбужденное (антисимметричное) состояния протона составляют расщепленный дублет и в энергетическом спектре расположены достаточно близко друг к другу. Что же касается остальных возбужденных состояний, то они, как правило, значительно отдалены от дублета [1]. Эти возбужденные состояния практически не участвуют в процессе образования спонтанной электрической поляризации и поэтому в работах, где исследуются особенности сегнетоэлектрического фазового перехода, ими можно игнорировать. Однако переход в одно из указанных возбужденных состояний может привести к образованию в кристалле сильно связанного (френкелевского) экситона. Дело в том, что возникновение френкелевских экситонов связано с возможностью резонансной передачи энергии возбуждения между взаимодействующими ячейками. В сегнетоэлектрических кристаллах процесс переноса энергии возбуждения может протекать достаточно интенсивно, так как для них характерно сильное взаимодействие между ячейками.

В рассматриваемой нами модели каждая элементарная ячейка представляется в виде трехуровневой системы — кроме расщепленного дублета имеется еще одно возбужденное состояние (E_1 , E_2 и E_3 являются собственными значениями энергии этих состояний (см. рис. 1)). Гамильтониан задачи можно представить в следующем виде:

$$\hat{H} = \hat{H}_0 + \hat{H}_1 + \hat{V}, \quad (1)$$

$$\hat{H}_0 = \sum_n (E_1 a_{n1}^+ a_{n1} + E_2 a_{n2}^+ a_{n2}) - \quad (2)$$

$$- \frac{1}{2} \sum_{n, m} J_{n, m} (a_{n2}^+ a_{n1} + a_{n1}^+ a_{n2})(a_{m2}^+ a_{m1} + a_{m1}^+ a_{m2}),$$

$$\hat{H}_1 = \sum_n E_3 a_{n3}^+ a_{n3} -$$

$$- \frac{1}{2} \sum_{i, j=1}^2 \sum_{n, m} M_{n, m}^{(i, j)} (a_{n3}^+ a_{ni} + a_{ni}^+ a_{n3})(a_{mj}^+ a_{m3} + a_{m3}^+ a_{mj}), \quad (3)$$

$$\hat{V} = - \sum_n \lambda (a_{n2}^+ a_{n1} + a_{n1}^+ a_{n2}). \quad (4)$$

Здесь a_{ni}^+ и a_{ni} ($i=1, 2, 3$) являются операторами рождения и уничтожения протона в i -состоянии узла n , J_{nm} и $M_{nm}^{(i, j)}$ — матричные элементы оператора взаимодействия между ячейками n и m , $\lambda = d_{12} \Xi$ описывает взаимодействие системы с внешним электростатическим полем (d_{12} — матричный элемент дипольного перехода из первого состояния во второе, Ξ — напряженность внешнего поля); в (2) и (3) штрих у знака суммы означает, что $n \neq m$.

При определении значений матричных элементов $M_{nm}^{(i, j)}$ можно учесть только диполь-дипольное взаимодействие. Тогда

$$M_{nm}^{(i, j)} = \frac{1}{|R_{nm}|^3} [d_{3i} d_{3j} (R_{nm})^2 - 3 (d_{3i} R_{nm})(d_{3j} R_{nm})], \quad (5)$$

где R_{nm} — радиус-вектор, проведенный от узла n к узлу m , d_{31} — матричный элемент дипольного перехода. Нетрудно убедиться, что в зависимости от симметрии волновой функции протона в третьем состоянии одна из величин d_{31} или d_{32} обращается в нуль. Следовательно, $M_{nm}^{(1,2)} = 0$; кроме того, в нуль обращается также либо $M_{nm}^{(1,1)}$, либо $M_{nm}^{(2,2)}$.

В настоящей работе, по-видимому, нецелесообразен переход к более принятой форме спиновых операторов (см., например, [2]), поскольку в представленной форме нагляднее проявляется аналогия с теорией экситонов.

Согласно оценкам, проведенным в [1],

$$E_3 - E_2 \gg \Omega, I, L^{(i)}(k), \lambda, \quad (6)$$

где

$$\Omega = E_2 - E_1, I = \sum_m J_{nm}, L^{(i)}(k) = \sum_m M_{n,m}^{(i,i)} e^{ikR_{nm}}. \quad (7)$$

Это обстоятельство использовано при записи гамильтониана (1), где $\hat{H}_1$ представлен в виде, соответствующем приближению Гайтлера-Лондона (см. [3]), а в $\hat{V}$ пренебрегается переходом в третье состояние.

Для исследования возможности образования в кристалле сильно связанных экситонов необходимо определить вначале волновую функцию и энергию основного состояния системы (задача рассматривается вдали от точки фазового перехода, в пределе низких температур). При этом в силу (6) высшие возбужденные уровни можно не учитывать, т. е. пренебречь оператором $\hat{H}_1$.

Волновую функцию основного состояния системы ищем вариационным методом, представляя ее в виде

$$|\Psi_0\rangle = \prod_n y (1 + x a_{n2}^+ a_{n1}) |0\rangle, \quad (8)$$

где x и y — вариационные параметры, а $|0\rangle$ — то состояние системы, в котором все протоны находятся в первом состоянии трехуровневой системы. Необходимо минимизировать функцию

$$W(x, y) = \langle \Psi_0 | \hat{H}_0 + \hat{V} | \Psi_0 \rangle + \mu \langle \Psi_0 | \Psi_0 \rangle, \quad (9)$$

где μ — неопределенный множитель Лагранжа. После несложных вычислений получаем, что значения вариационных параметров можно определить из следующей системы уравнений:

$$\lambda = \frac{\Omega x}{1 - x^2} - \frac{2Ix}{1 + x^2}, \quad (10)$$

$$y^2 = [1 + x^2]^{-1}, \text{ если } 2I > \Omega. \quad (11)$$

Из вида волновой функции (8) следует, что если значение параметра x отлично от нуля, то каждая ячейка кристалла обладает дипольным моментом. Это связано с тем обстоятельством, что в (8) состояние каждой ячейки представлено в виде суперпозиции двух состояний, между которыми разрешен дипольный переход. Значение дипольного момента каждой ячейки определяется выражением

$$p = d_{12} \langle \Psi_0 | a_{n2}^+ a_{n1} + a_{n1}^+ a_{n2} | \Psi_0 \rangle = \frac{2 d_{12} x}{1 + x^2}. \quad (12)$$

Формулы (10) и (12) определяют параметрическую связь между напряженностью внешнего электростатического поля и дипольным моментом (поляризованностью) отдельной ячейки системы.

Определим также энергию, приходящуюся на одну ячейку кристалла в основном состоянии:

$$\varepsilon = \frac{1}{N} \langle \Psi_0 | \hat{H}_0 + \hat{V} | \Psi_0 \rangle = E_1 + \varepsilon_{12}, \quad (13)$$

где

$$\varepsilon_{12} = \frac{2x^2}{1+x^2} - \frac{2Ix^2}{(1+x^2)^2} - \frac{2\lambda x}{1+x^2}, \quad (14)$$

N — количество узлов в кристалле. Формулы (10), (13) и (14) определяют параметрическую связь между напряженностью внешнего поля и энергией основного состояния кристалла.

Отметим, что здесь зависимости p и ε от E имеют такие же особенности, какие имеют зависимости поляризации и свободной энергии от напряженности внешнего поля в феноменологической теории Ландау—Гинзбурга—Девоншира [2].

Как было указано, переход протона в третье (возбужденное) состояние может привести к образованию в кристалле сильно связанного экситона. Волновую функцию экситона с импульсом k можно представить в виде

$$|\Psi_k^{(ex)}\rangle = \frac{1}{\sqrt{N}} \sum_l e^{ikl} \frac{(a_{l3}^+ a_{l1} + x a_{l3}^+ a_{l2})}{1+x^2} |\Psi_0\rangle. \quad (15)$$

Здесь мы предполагали, что изменение состояния в одной ячейке не влияет на состояния остальных. Это обусловлено дальнедействующим характером взаимодействия между ячейками.

Определим энергию, необходимую для образования экситона:

$$\begin{aligned} \Delta E &= \langle \Psi_k^{(ex)} | \hat{H} | \Psi_k^{(ex)} \rangle - \langle \Psi_0 | \hat{H} | \Psi_0 \rangle = \\ &= E_3 - E_1 - \varepsilon_{12} + \frac{2Ix^2}{(1+x^2)^2} - \frac{L^{(1)}(k) + x^2 L^{(2)}(k)}{1+x^2}. \end{aligned} \quad (16)$$

Подставляя сюда значения ε_{12} и λ из (10) и (14), получим

$$\Delta \varepsilon = \Delta E - (E_3 - E_1) = \frac{2x^2}{1+x^2} - \frac{L^{(1)}(k) + x^2 L^{(2)}(k)}{1+x^2}. \quad (17)$$

Формулы (17) и (10) определяют параметрическую связь между напряженностью внешнего электростатического поля и энергией, необходимой для образования экситона. В случае $L^{(1)}(k) \neq 0$ и $L^{(2)}(k) = 0$ эта зависимость представлена на рис. 2. Примечательно, что энергия, необходимая для образования экситона, не только неоднозначно зависит от напряженности внешнего поля, но и меняется скачком. Аналогичные особенности имеют место и в случае $L^{(1)}(k) = 0$, $L^{(2)}(k) \neq 0$.

Скачкообразное изменение энергии, необходимой для образования экситона, следует объяснить переключением спонтанной поляризации под

действием приложенного электрического поля, когда все ячейки кристалла скачком меняют величину и направление своего дипольного момента.

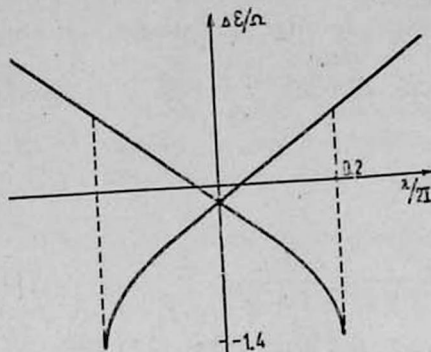


Рис. 2. Зависимость энергии, необходимой для образования экситона, от напряженности внешнего электростатического поля в случае $\Omega/2I = 0,3$, $L^{(1)}/\Omega = 2$.

Отметим также, что неаналитичность функций $L^{(1,2)}(\mathbf{k})$ и в данном случае приводит к расщеплению уровней продольных и поперечных длинноволновых экситонов. В рамках обсуждаемой нами простейшей модели каждая элементарная ячейка содержит лишь одну водородную связь. Между тем в реальных сегнетоэлектриках число водородных связей, как правило, значительно больше. Указанное обстоятельство должно привести к дavyдовскому расщеплению энергетических полос [3].

ЛИТЕРАТУРА

1. Вакс В. Г., Зиненко В. И. ЖЭТФ, 64, 650 (1973).
2. Лайне М., Гласс А. Сегнетоэлектрики и родственные им материалы. Изд. Наука, М., 1981.
3. Давыдов А. С. Теория молекулярных экситонов. Изд. Наука, М., 1968.

ԿԱՐԳԱՎՈՐՎԱԾ-ԶԿԱՐԳԱՎՈՐՎԱԾ ՏԻՊԻ ՍԵԳՆԵՏՈՒԷԼԵԿՏՐԻԿՆԵՐՈՒՄ
ԷԲՄԻՏՈՆՆԵՐԻ ԱՌԱՋԱՑՄԱՆ ՀԱՐԱՎՈՐՈՒԹՅԱՆ ՄԱՍԻՆ

Խ. Վ. ՆԵՐԿԱՐԱՐՅԱՆ

Քննարկվում է կարգավորված-չկարգավորված տիպի սեգնետոէլեկտրիկներում ուժեղ կապված էքսիտոնների առաջացման հնարավորությունը: Ցույց է տրված, որ նման համակարգերում էքսիտոնի առաջացման համար անհրաժեշտ էներգիայի մեծությունը ոչ միայն միարժեք չէ կախված արտաքին էլեկտրաստատիկ դաշտի լարվածությունից, այլ և փոխվում է թռիչքով:

ON THE POSSIBILITY OF EXCITON FORMATION IN ORDER-DISORDER TYPE FERROELECTRICS

Kh. V. NERKARARYAN

The possibility of producing strong coupled excitons in order-disorder type ferroelectrics is discussed. It is shown, that in such systems the energy necessary for the formation of excitons is a many-valued and step function of the external electric field intensity.